

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 11-309747

(43)Date of publication of application : 09.11.1999

(51)Int.Cl.

B29C 45/14

B32B 15/08

B32B 27/00

H01M 2/16

H01M 2/18

H01M 8/02

// B29K 83:00

B29K105:22

B29L 9:00

B29L 31:34

(21)Application number : 10-120402

(71)Applicant : MITSUBISHI PLASTICS IND LTD

(22)Date of filing : 30.04.1998

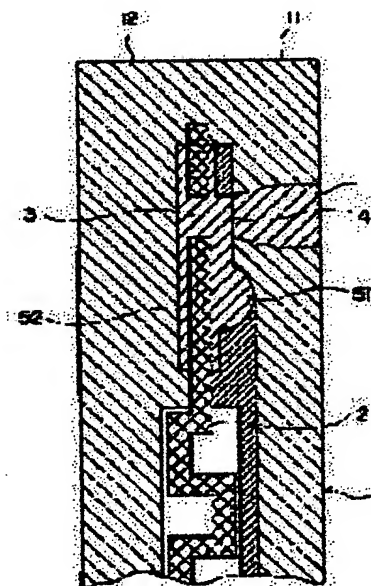
(72)Inventor : SEKIYAMA MASAYOSHI

## (54) PRODUCTION OF SILICONE RESIN-METAL COMPOSITE

## (57)Abstract:

**PROBLEM TO BE SOLVED:** To provide a method for producing a silicone resin-metal composite which is correct and excellent in production efficiency and on one side of which a silicone resin layer is formed.

**SOLUTION:** In a method for producing a silicone-metal composite in which a silicone resin layer 51 is formed on one side of a thin metal plate 2 by an injection molding method, a through hole 3 is formed in the fringe part of the metal plate 2 arranged in a mold cavity, and a silicone resin 6 is injected from one side of a silicone resin layer 51 to be formed and packed into the cavity through the hole 3. After the silicone resin layers 51 being formed on both sides of the metal plate 2, the silicone resin layer on one side is peeled off.



S.A.

## LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平11-309747

(43) 公開日 平成11年(1999)11月9日

(51) Int.Cl. <sup>8</sup>	識別記号	F I	
B 2 9 C 45/14		B 2 9 C 45/14	
B 3 2 B 15/08		B 3 2 B 15/08	K
	27/00		1 0 1
H 0 1 M 2/16		H 0 1 M 2/16	L
	2/18		Z
審査請求 未請求 請求項の数 3 O L (全 4 頁) 最終頁に続く			

(21) 出願番号 特願平10-120402  
 (22) 出願日 平成10年(1998)4月30日

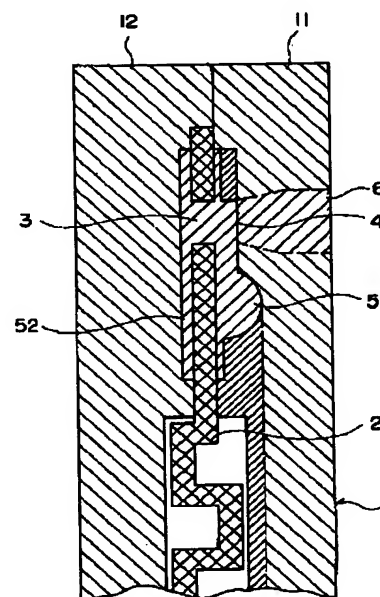
(71) 出願人 000006172  
 三菱樹脂株式会社  
 東京都千代田区丸の内2丁目5番2号  
 (72) 発明者 関山 政義  
 神奈川県平塚市真土2480番地 三菱樹脂株  
 式会社平塚工場内

(54) 【発明の名称】 シリコーン樹脂-金属複合体の製造方法

(57) 【要約】

【課題】 正確でかつ生産効率に優れた片面にシリコーン樹脂層を設けたシリコーン樹脂-金属複合体の製造方法を提供する。

【解決手段】 金属薄板の片面にシリコーン樹脂層を射出成形法により形成するシリコーン樹脂-金属複合体の製造方法であって、金型キャビティー内に配置した金属薄板の周縁部に貫通孔を設けるとともに、形成するシリコーン樹脂層の片側からシリコーン樹脂を射出し、貫通孔を通じて金型キャビティー内に樹脂を充填し金属薄板の両面にシリコーン樹脂層を形成した後、片側のシリコーン樹脂層を剥離することを特徴とするシリコーン樹脂-金属複合体の製造方法。



A-A

## 【特許請求の範囲】

【請求項 1】 金属薄板の片面にシリコン樹脂層を射出成形法により形成するシリコン樹脂-金属複合体の製造方法であって、金型キャビティー内に配置した金属薄板の周縁部に貫通孔を設けるとともに、形成するシリコン樹脂層の片側からシリコン樹脂を射出し、貫通孔を通じて金型キャビティー内に樹脂を充填し金属薄板の両面にシリコン樹脂層を形成した後、片側のシリコン樹脂層を剥離することを特徴とするシリコン樹脂-金属複合体の製造方法。

【請求項 2】 形成するシリコン樹脂層の厚みが 0. 0 5 mm ~ 1. 0 mm で硬度 (J I S K 6 3 0 1 スプリング式硬さ試験 A 形) が 4 0 ~ 7 0 の範囲であることを特徴とする請求項 1 乃至 2 記載のシリコン樹脂-金属複合体の製造方法。

【請求項 3】 燃料電池のセパレータに用いることを特徴とする請求項 1 乃至 3 記載のシリコン樹脂-金属複合体の製造方法。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は、電気・電子部品等のクッション材、パッキン材、スペーサー、特に燃料電池のセパレータとして好適に使用でき、複雑な形状や、部品の小型化が可能なシリコン樹脂-金属複合体の製造方法であって、特に正確でかつ生産効率に優れた片面にシリコン樹脂層を設けたシリコン樹脂-金属複合体の製造方法に関する。

## 【0002】

【従来の技術】 従来からシリコンゴムは、耐熱性や電気的絶縁性等の特性に優れていることから、上記クッション材やスペーサー等の各種用途に使用されている。

## 【0003】

【発明が解決しようとする課題】 上記のシリコンゴム単体からなり、比較的肉厚の薄い薄膜のものを電気・電子部品等にそのまま組み入れようとする、薄膜上にシワが生じたり、薄膜同士で密着し剥がしづらくなる等の作業性に問題があった。そこで、このような問題点を解消するためにシリコンゴム単体と非伸縮性の金属薄板と複合一体化した積層体が知られている。

【0004】 上記複合一体化の方法としては、通常、金属薄板の片面にシリコンゴムシートを載置し、加熱加圧する方法が行われているが、部分的に載置する場合、位置合せが困難であったり、さらには金属薄板の表面に凹凸があるものでは、均一に貼り合わせる事が困難という問題があった。そこで、シリコン樹脂層を射出成形法により形成する金属複合体の製造方法が提案されているが、この方法では樹脂層を片面に設ける場合、射出時の樹脂圧によって得られる複合体にそり等の変形が生じ易いという問題がある。

## 【0005】

【課題を解決するための手段】 本発明は、上述の問題点を解消できるシリコン樹脂-金属複合体の製造方法を見出したものであり、その要旨とするところは、金属薄板の片面にシリコン樹脂層を射出成形法により形成するシリコン樹脂-金属複合体の製造方法であって、金型キャビティー内に配置した金属薄板の周縁部に貫通孔を設けるとともに、形成するシリコン樹脂層の片側からシリコン樹脂を射出し、貫通孔を通じて金型キャビティー内に樹脂を充填し金属薄板の両面にシリコン樹脂層を形成した後、片側のシリコン樹脂層を剥離することを特徴とするシリコン樹脂-金属複合体の製造方法にある。

## 【0006】

【発明の実施の形態】 以下、本発明を詳しく説明する。本発明に使用される金属薄板としては、鋼板、ステンレス鋼板、メッキ処理鋼板、アルミニウム板、銅板、チタン板等が好適であるが、これらには、限定されない。金属薄板の厚みは 0. 1 ~ 2. 0 mm の範囲のものが好適であり、表面に凹凸を有するものも使用できる。この凹凸は用途等によりその形状は異なるが、3 次元的な構造であって、用途が燃料電池、特に固体高分子型燃料電池のセパレータでは、燃料ガスの流路用溝等が相当する。

【0007】 なお、金属薄板のシリコン樹脂層と接する面で最終的に樹脂層を残す面側には、密着性の点から各種プライマー層を設けることが好ましい。このプライマー層はスプレー法やデIPPING法等の通常の方法により被覆すればよい。プライマー層の厚みは 0. 0 1  $\mu$  m ~ 5. 0  $\mu$  m の範囲であることが好ましく、0. 0 1  $\mu$  m 未満では、塗布厚さの調整が困難で有り、5. 0  $\mu$  m を越えるものでは、密着性の改良効果が少ない。また、シリコン樹脂層を剥離する面には剥離剤を塗布してもよい。

【0008】 本発明の製造方法では、まず上記金属薄板の両面にシリコン樹脂層を形成するが、使用するシリコン樹脂は液状のシリコン樹脂であって、通常の付加型液状シリコン樹脂で二液タイプのものが使用でき、粘度が  $10^3 \sim 10^4$  ポイズ (25℃) の樹脂が好適に使用できる。粘度が  $10^3$  ポイズ未満のものでは、柔らかすぎて取り扱いにくく、 $10^4$  ポイズを越えるものでは、射出成形時の流動性に劣り易い傾向にある。また、必要に応じて微粉末シリカ、ケイ素土、高熱伝導性無機フィラー等の充填剤を添加してもよい。

【0009】 本発明ではシリコン樹脂層を射出成形法により形成することに特徴があり、射出成形法としては金属薄板を金型内に保持して樹脂を射出する、いわゆるインサート成形法によればよく、金型温度として 130 ~ 180℃ の範囲、射出圧として 150 ~ 1000 K g f / c m<sup>2</sup> の範囲で気泡やバリ等が発生しない条件を適宜決めて成形すればよい。

【0010】 本発明の製造方法では上記金属薄板の周縁

部に貫通孔を設ける必要があり、形成するシリコン樹脂層の片側からシリコン樹脂を射出し、貫通孔を通じて金型キャビティー内に樹脂を充填する。本発明の方法では両面同時にシリコン樹脂層を形成できることから、そり等の変形を生じることなく効率的な生産が可能となる。貫通孔の径は0.3mmからゲート径とほぼ同一径までの範囲とすればよく、貫通孔を設ける位置と個数は、樹脂流れの全長を、一点から流出する流動長で割った数字により必要な貫通孔の位置と個数が推測でき、さらに流れにくい形状の箇所貫通孔を設ければ良い。さらに、シリコン樹脂を流動し易いシリコン樹脂層側から射出する方法が充填効率の点から好ましい。上記貫通孔を設けることにより充填の効率化とともに、金属薄板とシリコン樹脂層との接着効果が向上するという効果がある。

【0011】射出成形後のシリコン樹脂層の厚みは0.05mm～1.0mmの範囲とすることが好ましく、0.05mm未満では、正確な射出成形がしづらく、また弾力効果が出にくく、パッキング材としての利用性に劣り、1.0mmを超えるものでは燃料電池、特に固体高分子型燃料電池のセパレータ用としての用途では小型化しづらく、またコスト高になり易い。

【0012】さらに、射出成形後のシリコン樹脂層の硬度を40～70、好ましくは50～60の範囲とすることが好ましい。硬度の測定方法はJISK6301スプリング式硬さ試験 A形に準拠して行なう。この硬度が40未満では柔らかすぎて取り扱いにくく、70を超えると硬くなりすぎて弾力性に欠ける傾向にある。

【0013】本発明の方法では、上記方法により得られた複合体の不要な樹脂層を剥離することにより、片面に樹脂を被覆した複合体が得られる。剥離方法としては人手や機械的手段によることができる。

【0014】また、上記複合体は電気・電子部品等のクッション材、パッキン材、スペーサー、Oリング等に使用できるが、特に燃料電池（固体高分子型燃料電池）のセパレータの用途で、燃料電池スタックの両端部に好適に使用できる。このようなセパレータはより小型化が要求され、また多数のセパレータを重ね合わせて使用することからそり等の変形がなく精度が優れ、生産性のよいセパレータが要求されており、本発明の方法により得られる複合体はこのような要求を満足することが容易である。

【0015】

【実施例】以下、実施例について説明するが、本発明はこれに限定されるものではない。

（実施例）射出成形法により形成してなるシリコン樹脂—金属複合体製の燃料電池セパレータについて図1及び図2に基づいて説明する。図2は本発明の方法で得られた燃料電池セパレータ用金属複合体の片側（表面）の平面概略図である。

【0016】図1は図2の金属複合体のA—Aにおける断面概略図であって射出成形機金型1内に保持した状態を示す断面概略図であり、金属薄板2の端部は金型の固定側型板11と可動側型板12の合わせ面に載置し保持されている。

【0017】本発明の方法では金属薄板2の周縁部に貫通孔3を設ける必要があり、実施例では周縁部に貫通孔3を10箇所以上設けている。貫通孔3を設ける位置は適宜きめることができるが、図1に示すようにゲート4と連通するように設けると樹脂の流動が良好となり好ましい。また、形成するシリコン樹脂層の片側からシリコン樹脂を射出するが、図1に示すように、金型の固定側型板11のゲート4から液状シリコン樹脂6が射出される。

【0018】液状シリコン樹脂6は表面のシリコン樹脂層51から貫通孔3を通じて裏面のシリコン樹脂層52へキャビティー内に充填されることにより形成される。裏面のシリコン樹脂層52の形状は表面のシリコン樹脂層51と同一としている。

【0019】液状シリコン樹脂としては信越化学（株）製 KE-1950-60を使用し、金型温度160℃、射出圧500Kgf/cm<sup>2</sup>の条件で、ステンレス鋼板（表面プライマー処理 東芝シリコン（株）製ME-21）の片面に射出成形した。

【0020】脱型した後、図2に示した平面概略図の燃料電池セパレータを得た。図2では中央部分は省略しシリコン樹脂層のパッキン部、リブ部を斜線で示している。ついで、裏面のシリコン樹脂層52を剥離し、最終的な片面にシリコン樹脂層を有するセパレータを得た。

【0021】得られた燃料電池セパレータではステンレス鋼板とシリコン樹脂層との間の接着性が良好で剥離等がなく、またバリや気泡、変形等の発生が見られず燃料電池セパレータとしての性能上問題なかった。シリコン樹脂層の硬度は60であった。

【0022】

【発明の効果】上述したように、本発明の製造方法は片面にシリコン樹脂層を設けた金属複合体を正確にかつ効率的に製造できるという利点を有しており、各種電気・電子部品等のクッション材、パッキン材、スペーサー、特に燃料電池（固体高分子型燃料電池）のセパレータの製造方法としての利用性が大きい。

【図面の簡単な説明】

【図1】図2に示した金属複合体のA—Aにおける断面概略図である。

【図2】本発明の方法で得られた燃料電池セパレータ用金属複合体の片側（表面）の平面概略図である。

【符号の説明】

2 … 金属薄板

3 … 貫通孔

(4)

特開平11-309747

5

6

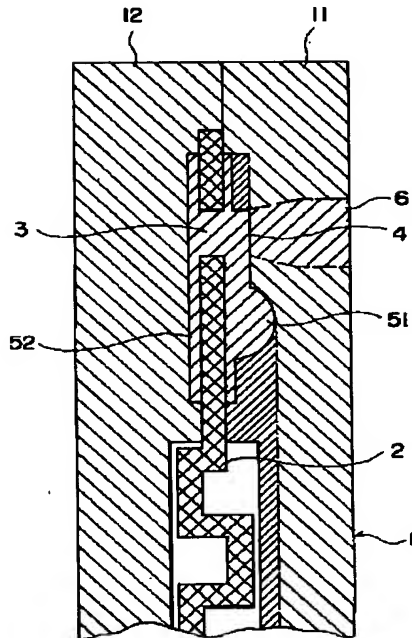
4 ... ゲート

6 ... シリコン樹脂

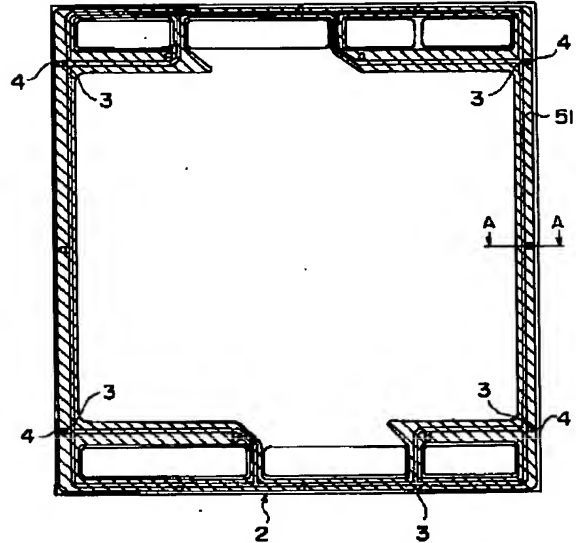
51 ... 表面のシリコン樹脂層

【図1】

【図2】



A-A



フロントページの続き

(51) Int. Cl. 6

識別記号

F I

H 0 1 M 8/02

H 0 1 M 8/02

B

// B 2 9 K 83:00

105:22

B 2 9 L 9:00

31:34